



III-V族半導体量子ドットの光学応答における局所電場効果に関する研究

著者	朝倉 健太
号	57
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工博第4777号
URL	http://hdl.handle.net/10097/61587

氏 名	あさくら けんた
授 与 学 位	朝倉 健太 博士 (工学)
学位授与年月日	平成 25 年 3 月 27 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 1 項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科 (博士課程) 電子工学専攻
学 位 論 文 題 目	III-V 族半導体量子ドットの光学応答における 局所電場効果に関する研究
指 導 教 員	東北大学教授 枝松 圭一
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 枝松 圭一 東北大学教授 白井 正文 東北大学教授 尾辻 泰一 東北大学准教授 三森 康義

論文内容要旨

半導体量子ドットは電子・正孔を 3 次元的な閉じ込めポテンシャル中に生成することにより、既存の半導体デバイスにはない新しい物性機能を発現するデバイスとして着目されている。特に量子情報通信分野において、半導体量子ドットは単一光子発生源や光で直接制御できる固体量子ビットとして注目されており、その電子状態のコヒーレント制御法の開発や、コヒーレント光学特性の解明を目指した研究が活発に行われている。量子情報通信分野における電子状態の制御法は、任意の量子力学的重ね合わせ状態を生成できるラビ振動を用いる手法が一般的である。半導体量子ドットにおいては、ラビ振動が理想 2 準位系から期待される正弦関数的形状と異なり、減衰振動形状を示す結果が非常に多く報告されている。その原因として、従来は濡れ層の非共鳴励起や励起子・フォノン相互作用による効果が提唱されてきた。その一方で、近年、半導体量子ドット内の微視的な電磁気学的相互作用である局所電場効果もラビ振動の振動形状を変化させることが理論的に提案された。そこで本研究では、半導体量子ドット中の局所電場効果に着目し、半導体量子ドットのコヒーレント制御法であるラビ振動に与える影響をフォトンエコ法により実験的に検証した。また、局所電場効果の定量的評価と数値解析を行うことで、半導体量子ドットの光学応答における局所電場効果の重要性を明らかにした。本論文はその研究成果をまとめたもので、全編 7 章より成る。

第 1 章「序論」では研究背景と目的について述べた。半導体量子ドットは、異なるバンドギャップを持つ半導体のヘテロ接合を利用してキャリアの 3 次元的な閉じ込めを実現する素子である。量子ドット中に閉じ込められた電子や正孔は原子・分子と類似の離散的なエネルギー準位構造を示すため、バルク結晶や量子井戸構造とは異なる特異な性質をデバイス応用することを目的として、近年盛んに研究が行われている。特に、量子ドット中の励起子はナノ秒を超える長い位相緩和時間を示すため、励起子状態のコヒーレント制御を目的としたラビ振動の研究が盛んに行われてきた。従来の単一量子ドット分光では、多くの測定結果で入射光強度の増加に対して振幅が減少する減衰振動型のラビ振動が観測されており、量子ドットが内部の微小な相互作用の影響を受けて理想 2

準位系とは異なる振舞いを示すことが明らかとなっている。このため、量子ドットのコヒーレント光学応答の解明が重要な研究課題であるといえる。従来の研究では、減衰振動型のラビ振動を説明する複数のモデルが理論提案されてきた。その中で、濡れ層の非共鳴励起や光励起中の励起子・音響フォノン相互作用の増大を取り入れたモデルでは、励起強度の増加に対して位相緩和が早くなる効果を考慮することで実験結果の減衰振動型ラビ振動とよい一致が得られている。その一方で、本研究ではラビ振動を減衰振動型とは異なる形状に変調する局所電場効果と呼ばれる新しい光学効果に着目した。局所電場効果は2000年代前半に理論提案が行われたが、現在までに実験的な観測報告が行われていない未知の現象である。また、局所電場効果は理論的には量子ドット系に普遍的な現象であることに加えて、量子ロジック制御等の新しい量子状態コヒーレント制御法への応用が期待されるため、物性と応用の両面において非常に興味深い光学効果であるといえる。こうした研究背景より、本研究では局所電場効果に起因する光学応答を実験的に検証し、半導体量子ドット物性の研究を発展させることを目的とした。

第2章「原理」では、論文の理解に必要な量子ドット物性としてラビ振動と局所電場効果について説明し、測定に用いたフォトンエコー法の原理について述べた。特に、フォトンエコー法を用いることで局所電場効果に起因した光学応答が抽出可能となる物理過程を説明した。局所電場効果とは、量子ドットの3次元的な閉じ込め効果による系の並進対称性の破れにより、量子ドット内部に電荷を伴う励起子分極が誘起されることに起因した現象である。このとき、誘起電荷間のクーロン相互作用により、電荷量に依存して励起子分極の共鳴エネルギーが変化する。光誘起電荷量は励起強度つまり分極の分布数差に依存するため、量子ドットの光学応答は局所電場効果により動的に変調されることを述べた。また、測定に用いたフォトンエコー法は試料に2本のパルス光を入射し、非線形光学過程を利用する分光法である。この分光法では、第1パルスにより巨視的分極が誘起され、時刻 $t = \tau$ に第2パルスの照射により時間反転操作を行い、 $t = 2\tau$ において位相が完全に回復した巨視的分極から放出されるエコー信号を測定する。局所電場効果が有意な場合には、第2パルスの励起により個々の分極の分布数差が変化し共鳴周波数も第2パルス前後で変調される。その結果として、 $t = 2\tau$ における巨視的分極の位相回復過程が妨げられ、フォトンエコー信号強度が変化する。このことから、フォトンエコー法を用いて第2パルスの励起強度に対する信号強度の変化を測定することで局所電場効果に起因する光学応答の観測が可能になることを述べた。

第3章「試料基礎特性」では試料の詳細について説明し、原子間力顕微鏡像、発光スペクトル、ポンプ・プローブ法および単一量子ドットの励起スペクトルによる測定結果を基に、反電場シフトの評価を行った。本研究で用いた量子ドットは、原子間力顕微鏡像より、粒径は50~70 nm、高さは4~7 nm、密度は約 $1.1 \times 10^{10} / \text{cm}^2$ と評価された。また、共鳴ポンプ・プローブ法の測定結果より、量子ドット中の励起子のエネルギー緩和時間は2.0 nsと評価された。これらの値や、励起スペクトルのからの波動関数の大きさの推定から、局所電場効果において重要な物理量である反電場シフトの大きさを5~35 μeV と定量的に評価した。

第4章「フォトンエコーの遅延時間依存性」ではフォトンエコー法の実験系の詳細と励起子位相緩和時間を評

価した結果について述べた。フォトンエコー信号の遅延時間依存性の測定を行い、その減衰曲線から試料の位相緩和時間を約 2.5 ns と評価した。また、励起子分極の位相緩和時間が励起強度にほぼ依存しないことから、観測された光学応答の変化が量子ドット内の電子状態のコヒーレントな変化を反映したものであると結論付けた。

第5章「フォトンエコーの励起密度依存性」では、フォトンエコー法によるラビ振動の測定結果について説明し、考察を行った。フォトンエコー法で観測されたラビ振動の形状変化について述べた後、第2章で展開された議論と第3章で定量的な評価を行った反電場シフトを基に数値解析を行い、実験で観測されたラビ振動の形状変化が定性的にも定量的にも再現されることを詳述した。フォトンエコー法によるラビ振動は、2つの励起パルスの遅延時間を固定し、第1パルスの励起密度を連続的に変化させてフォトンエコー信号強度を測定することで観測した。まず、時間幅 2.0 ps のパルスを用いて測定を行い、ラビ振動の形状が第2パルスの励起密度に依存して変化する観測結果を示した。第2パルスが弱励起の場合には、理想2準位系から期待される正弦関数型と同様の振舞いが観測された。しかしながら、第2パルスの励起強度の増加とともにラビ振動の最初のピーク位置に信号強度の減少が観測され、さらに第2パルスの強度を増加させると、弱励起時のラビ振動のピーク位置に窪み構造が現れる光学応答の変化が観測された。このラビ振動の形状の変化について、局所電場効果を含んだ光学的ブロッホ方程式を用いてラビ振動の数値解析を行った。数値解析では、反電場シフトの大きさとして第3章で評価した値を用いた。数値解析結果のラビ振動は第2パルスの励起強度に依存して振動形状が変化し、定量的にも定性的にも実験結果を良く再現する結果が得られた。この実験結果と数値計算結果の一致から、量子ドットにおける局所電場効果に起因した光学応答の実験的検証に成功したと結論付けた。また、時間幅 5.0 ps のパルス光を励起に用いて同様にラビ振動の測定を行い、第2パルスがさらに強励起の領域でのラビ振動の変調の様子についても考察を行った。観測されたラビ振動は上述の結果よりもさらに変調され、振動後半部でラビ振動の振幅が増大する特異な振舞いを示したが、局所電場効果を考慮することによりその振動形状が説明できることを示した。また、ブロッホベクトルの運動を解析することにより、局所電場効果によりラビ振動が変調される物理過程について定性的な説明を行った。

第6章「フォトンエコーのスペクトル分解測定」では帯域幅の広いフェムト秒のパルス光を励起に用いて、フォトンエコースペクトルを観測した結果について述べた。2準位系におけるフォトンエコースペクトルは励起光のスペクトル形状を反映するガウス関数型であることが期待されるが、測定結果では遅延時間の増加とともにスペクトル中心部に窪み構造が観測される特徴的なフォトンエコースペクトルが得られた。このとき、スペクトル中心部の窪み部分とサイドピークのエネルギー位置では位相緩和時間が 400 ps と 1000 ps と評価され、2倍程度異なる結果が得られた。また、前章と同様に局所電場効果を考慮した数値計算を行った結果、実験に用いた励起強度において、遅延時間増大とともに窪み構造を生じるフォトンエコースペクトルが系統的に再現された。このことから、本章ではラビ振動に加えてフォトンエコースペクトルの観点からも局所電場効果に起因する光学応答の検証に成功したと結論付けた。また、フォトンエコースペクトル上に窪み構造が現れる原因について考察を行い、

その物理過程が局所電場効果と励起光スペクトル上の強度分散および空間上の電場の不均一性を考慮してブロッホベクトルの運動を解析することにより定性的に理解されることを示した。

第7章「結論」では本研究のまとめと今後の発展性について述べた。本研究では、従来の単一量子ドット分光で未観測の光学効果である半導体量子ドット中の局所電場効果をフォトンエコー法を用いることで実験的に検証し、局所電場効果が半導体量子ドットの光学応答に重要な役割を果たしていることを示した。原理の章では理論面より考察を行い、フォトンエコー法を用いることで局所電場効果の影響が抽出可能となることを明らかにした。実験においては、ラビ振動とフォトンエコースペクトルという2つの光学応答において、それぞれ2準位系とは異なる特異な結果が得られた。これらの結果は、局所電場効果を考慮した数値解析により定量的にも定性的にも明瞭に振舞いが再現されることを示した。以上により、本研究では量子ドット分光において未知の光学効果であった局所電場効果に起因する光学応答を、歴史上初めて系統的に検証することに成功したといえる。このことから、この研究成果は、新規の現象を観測することにより量子ドット物性の発展に寄与する結果である。また、将来的には局所電場効果の自由度を利用した新しいコヒーレント制御法の開発が期待されるため、応用面においても意義のある画期的な成果であると結論付けられる。

論文審査結果の要旨

半導体量子ドットは、電子・正孔を3次元閉じ込めポテンシャル中に生成することにより、既存の半導体デバイスにはない新しい物性機能を発現するデバイスとして注目されている。特に量子情報通信分野においては、単一光子発生源や光で直接制御可能な固体量子ビットとしての応用可能性が注目されており、その電子状態の制御技術やコヒーレント光学特性の解明を目指した研究が活発に行われている。これらのうち、半導体量子ドットを量子ビットとみなし、その重ね合わせ状態を光でコヒーレントに制御する技術、すなわち光学的ラビ振動に関する研究については、半導体量子ドットにおいて観測されるラビ振動が理想二準位系における正弦関数的振動形状とは異なる形状を示すとの結果が多数報告されている。その原因として、従来、電子格子相互作用による効果などが提唱されてきた。近年、半導体量子ドットの形状・サイズの有限性に起因した微視的な局所電場効果がラビ振動の振動形状を変化させることが理論的に提案され、その実験的検証が待たれていた。本研究では、半導体量子ドット中の局所電場効果に着目し、それがラビ振動に与える影響について、フォトンエコー法を用いた光学的手法によって実験的に検証した。そして、実験結果の定量的評価と理論に基づく数値解析を行うことにより、局所電場効果が半導体量子ドットの光学応答に果す重要性を示した。本論文はその研究成果をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は序論であり、研究の背景と目的、関連する先行研究等について述べている。

第2章では、本研究の基礎となる背景知識と理論について述べている。まず半導体量子ドットにおける基礎事項を説明した後、本研究の主題である半導体量子ドット中の局所電場効果の理論について紹介している。また、局所電場効果を考慮した場合に予想される光学応答の変化についても考察を行っている。

第3章では、本研究で用いた試料および実験方法について述べている。用いた試料の原子間力顕微鏡像から半導体量子ドットの平均サイズを求めるとともに、試料の発光スペクトルや光学励起された電子・正孔の寿命等の基礎光学特性の測定結果から、局所電場効果における重要な物理量である反電場シフトの大きさを定量的に評価している。この結果は、以下の章で述べる実験結果と局所電場効果を考慮した数値解析の結果とを定量的に比較考察することを可能としたもので、本研究における重要な成果の一つである。

第4章では、フォトンエコー信号の時間応答特性と、その励起強度依存性を測定した結果について述べている。測定結果から導かれる電子分極の位相緩和時間が励起強度にほぼ依存しないことから、観測された光学応答の変化が量子ドット内の電子状態のコヒーレントな変化を反映したものであると結論している。

第5章では、フォトンエコー法によるラビ振動の測定結果について述べるとともに、考察を与えている。観測されたラビ振動について、その励起パルス強度に対する形状変化について記述した後、局所電場効果を考慮した数値解析の結果と比較考察した結果、実験で観測されたラビ振動の形状変化が、局所電場効果を用いて定量的に再現されることを指摘している。これは半導体量子ドットにおける局所電場効果を実験的に初めて検証したことを意味し、量子情報通信分野のみならず、半導体物理学、光物性物理学の面からも高く評価される。

第6章では、フォトンエコー信号のスペクトル分解測定において、理想的二準位系では現れない異常なスペクトル変化を観測した結果について述べるとともに、局所電場効果を考慮した数値解析結果と比較検討している。そして、得られた結果が局所電場効果によって首尾一貫して説明し得ることを明らかにし、第5章で得た結論を補完している。

第7章は結論であり、本研究の成果をまとめると共に、今後の展望として、局所電場効果を積極的に利用したコヒーレント制御法実現の可能性について指摘している。

以上要するに本論文は、半導体量子ドットにおける量子状態コヒーレント制御に際する局所電場効果の重要性を世界に先駆けて実験的に明らかにしたものであつて、電子工学、量子情報通信工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。